

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

IN RE APPLICATION OF: Yasumasa TAKAO, et al.

GAU:

SERIAL NO: New Application

EXAMINER:

FILED: Herewith

FOR: FLAME SYNTHESIZED ALUMINUM NITRIDE FILLER-POWDER

REQUEST FOR PRIORITY

ASSISTANT COMMISSIONER FOR PATENTS
WASHINGTON, D.C. 20231



#2
D.G.
2-19-02

SIR:

- ☐ Full benefit of the filing date of U.S. Application Serial Number, filed, is claimed pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §120.
- ☐ Full benefit of the filing date of U.S. Provisional Application Serial Number, filed, is claimed pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §119(e).
- ☒ Applicants claim any right to priority from any earlier filed applications to which they may be entitled pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §119, as noted below.

In the matter of the above-identified application for patent, notice is hereby given that the applicants claim as priority:

<u>COUNTRY</u>	<u>APPLICATION NUMBER</u>	<u>MONTH/DAY/YEAR</u>
JAPAN	2000-322130	October 23, 2000

Certified copies of the corresponding Convention Application(s)

- ☒ are submitted herewith
- ☐ will be submitted prior to payment of the Final Fee
- ☐ were filed in prior application Serial No. filed
- ☐ were submitted to the International Bureau in PCT Application Number .
Receipt of the certified copies by the International Bureau in a timely manner under PCT Rule 17.1(a) has been acknowledged as evidenced by the attached PCT/IB/304.
- ☐ (A) Application Serial No.(s) were filed in prior application Serial No. filed ; and
(B) Application Serial No.(s)
 - ☐ are submitted herewith
 - ☐ will be submitted prior to payment of the Final Fee

Respectfully Submitted,

OBLON, SPIVAK, McCLELLAND,
MAIER & NEUSTADT, P.C.

Norman F. Oblon
Registration No. 24,618

C. Irvin McClelland
Registration Number 21,124



22850

Tel. (703) 413-3000
Fax. (703) 413-2220
(OSMMN 10/98)

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

Jc872 U.S. PTO
09/981766
10/19/01

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出 願 年 月 日

Date of Application:

2000年10月23日

出 願 番 号

Application Number:

特願2000-322130

出 願 人

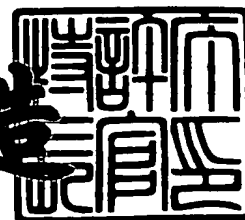
Applicant(s):

経済産業省産業技術総合研究所長

2001年 9月18日

特 許 庁 長 官
Commissioner,
Japan Patent Office

及 川 耕 造



出証番号 出証特2001-3085761

【書類名】 特許願

【整理番号】 11212071

【提出日】 平成12年10月23日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 C04B 35/58
C01F 7/00
C08K 3/34

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県名古屋市北区八代町2-109 八代宿舎401

【氏名】 高尾 泰正

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県名古屋市緑区鳴子町5-41

【氏名】 山東 睦夫

【特許出願人】

【識別番号】 000001144

【氏名又は名称】 工業技術院長 梶村 皓二

【指定代理人】

【識別番号】 220000334

【氏名又は名称】 工業技術院名古屋工業技術研究所長 榎本 祐嗣

【代理関係の特記事項】 特許出願人 工業技術院長 梶村 皓二の指定代理人

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 火炎で合成した窒化アルミニウム製フィラー粉体

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 火炎で合成した窒化アルミニウム製フィラー粉体であって、粒子径範囲が $0.001 \sim 500 \mu\text{m}$ に含まれ、平均粒子径範囲が $0.1 \sim 100 \mu\text{m}$ で、粒子の外形が球状であり、火炎の存在下、気相中で製造したことを特徴とする Al 及び O 及び N 元素を含む粉体又は Al 及び N 元素を含む粉体。

【請求項 2】 C 又は H 元素から成る可燃性ガス単独の燃焼火炎、又は可燃性ガスと酸素の混合ガスの燃焼火炎、又は可燃性ガスと酸素の割合を完全燃焼比より酸素を少なくした還元性燃焼火炎、又は不活性ガスのプラズマによる火炎、又は高電圧を印加された非接触状態下の金属間に発生するアーク炎、の存在下で製造することを特徴とする請求項 1 に記載の粉体。

【請求項 3】 原料を粒子径範囲が $0.001 \sim 500 \mu\text{m}$ に含まれる Al 元素から成る粉体とし、窒素又はアンモニア又は不活性ガスの存在下で、火炎を用いて窒化反応を進行させることを特徴とする請求項 1 に記載の粉体。

【請求項 4】 原料を夫々の粒子径範囲が $0.001 \sim 500 \mu\text{m}$ に含まれる Al 及び O 元素から成る粉体と C 元素から成る粉体の混合物とし、窒素又はアンモニア又は不活性ガスの存在下で、火炎を用いて窒化反応を進行させることを特徴とする請求項 1 に記載の粉体。

【請求項 5】 請求項 1 ～ 4 のいずれかに記載の粉体を、火炎又は粉体に高温を付与可能な装置を用いて、連続的又は断続的に、 $500 \sim 10000^\circ\text{C}$ の温度範囲で、空气中又は窒素又はアンモニア又は不活性ガスの存在下で、又は真空状態で、熱処理を行うことを特徴とする請求項 1 に記載の粉体。

【請求項 6】 請求項 1 ～ 5 のいずれかに記載の粉体を製造する方法であって、

粒子径範囲が $0.001 \sim 500 \mu\text{m}$ に含まれ、平均粒子径範囲が $0.1 \sim 100 \mu\text{m}$ である原料粉体を高分散かつ安定な流動化又はエアロゾル状態に形成する工程、

上記原料粉体を火炎の存在下で直接窒化又は還元窒化する窒化反応に付して窒

化物を合成する工程、

必要により、上記窒化物を熱処理する工程、

から成ることを特徴とする A 1 及び O 及び N 元素を含む粉体又は A 1 及び N 元素を含む粉体の製造方法。

【請求項 7】 請求項 1 ～ 5 のいずれかに記載の粉体から成る原料粉体（フィラー）であって、組成が無機材料から成る粉体を、組成が有機材料から成る樹脂系原料に充填して用いる複合材料系において、その原料粉体（フィラー）として用いるための A 1 及び O 及び N 元素を含む粉体又は A 1 及び N 元素を含む粉体。

【請求項 8】 請求項 1 ～ 5 のいずれかに記載の粉体の製造に使用するための装置であって、火炎の発生装置と、原料粉体の供給装置と、空気又は窒素又はアンモニア又は不活性ガスの供給装置とを構成要素とし、原料粉体の窒化反応が、火炎の存在下、気相中で進行するようにしたことを特徴とする製造装置。

【請求項 9】 同軸上に内径の異なる複数個の円筒管を組み合わせた構造を有する火炎の発生装置を構成要素とし、何れかの円筒管へ原料粉体を供給し、他の円筒管へ反応ガスを供給して、原料粉体の該円筒管先端部付近で、原料粉体と反応ガスとが拡散混合され、原料粉体の窒化反応が火炎の存在下、気相中で進行するようにしたことを特徴とする請求項 8 に記載の製造装置。

【発明の詳細な説明】

【 0 0 0 1 】

【発明の属する技術分野】

本発明は、新規な窒化アルミニウム粉体、その製造方法及び製造装置に関するものであり、更に詳しくは、火炎の存在下、気相中で窒化反応が進行するようにしたことにより、組成が無機材料から成る粉体を組成が有機材料から成る樹脂系原料に充填して用いる複合材料系において、その原料粉体（フィラー）として必要な粒子径と球形度を達成した新規な窒化アルミニウム粉体、その製造方法及び製造装置に関するものである。

【 0 0 0 2 】

【従来の技術】

電子材料関連技術の中で、組成が無機材料から成る粉体を、組成が有機材料から成る樹脂系原料に充填して用いる複合材料系は、絶縁材料や電極・導電材料、電気粘性流体、化学機械研磨用スラリー、射出成形や鋳込み成形などのセラミック成形プロセス原料などとして使用される重要材料系である。更に近年では、この複合材料系は、半導体素子の保護・絶縁などを目的としたパッケージング材料に広く利用されるようになってきている。VLSI化の進展に伴う素子の微細化に対応するために、微小な電極間への注入や任意形状化を実現するパッケージング材料の、高放熱性・高熱伝導性・低熱膨張性と同時に、低粘性・高成形性が不可欠となっている。

【0003】

放熱性を向上する目的で充填される無機フィラー粉体は、現在のところSi及びO元素から成る非晶質で球状のシリカ粉体が主流を占めている。熱的特性の観点からは多くのシリカを充填するほうが望ましいが、その場合には、粘性・成形性が低下するため限界がある。そこで、成形性を損なわずにできるだけ多くのシリカを充填する目的で、シリカの粒子径分布や表面修飾の検討、微粒子の添加などが試みられ、これらの各種制御を組み合わせる工程が採用されている。しかし、計画されている次期半導体素子など、高度化する要求精度に応えるには、現時点のフィラー特性では対応に限界があることが指摘されていた（例えば、萩原伸介、“半導体用封止材の開発現況”、プラスチック、Vol. 49、p. 58、1998）。

【0004】

シリカの理論的熱伝導率が約 $2\text{ W m}^{-1}\text{ K}^{-1}$ であるのに対し、窒化アルミニウムは約 $300\text{ W m}^{-1}\text{ K}^{-1}$ で、シリカより少量の添加でも高い放熱性が期待できる。即ち、熱的特性以外の、粒子径分布や球形度などで現行シリカフィラーと同等の特性を有する窒化アルミニウムフィラーが存在すれば、熱的特性と粘性・成形性を、同時かつ画期的に向上させる可能性がある。この観点から、既に、シリカの“一部”を窒化アルミニウム粉体に代替する試みが発表されている（例えば、特開平9-183610公報）。しかし、現時点では、フィラー粉体として必要な粒子径（数 $\mu\text{ m}$ ～数 $10\mu\text{ m}$ ）を有する窒化アルミニウム粉体は、粉碎工程を経

て製造される直接窒化法が主流であるため、形状が角張った形をした非球状粉体となっており、粘性・成形性が著しく低下する欠点があった。そのため、球状シリカフィラーを同時に添加することを余儀なくされ、シリカの一部を代替するような使用法しかできていなかった。

【0005】

直接窒化法と並ぶ工業的製造方法として、アルミナと炭素の混合物を窒素雰囲気下で焼成する還元窒化法がある。粉碎工程が不要な還元窒化法では、比較的球形度の高い粉体が製造されている。しかし、現在の還元窒化法は主に焼結体原料粉体の供給プロセスとして確立されたもので、平均粒子径がサブ μm オーダーの粉体を対象とし、フィラー粉体として主に必要な10数 μm オーダー以上の粒子径を持つ粉体が容易に使用可能なように用意されてはいない。しかも、発熱反応である直接窒化法とは正反対の、吸熱反応である還元窒化法では、1500～1800℃程度の高温度域、かつ一定時間以上の熱処理が必須であり、フィラー粉体のような比較的大粒径の粉体を製造するため、大粒径のアルミナなどの原料粉体を用意した場合に、電気炉加熱のみで効率よく還元窒化プロセスを進めることができるか、確認されてはいない。

【0006】

研究室レベルで検討が行われている窒化アルミニウム粉体の製法として、有機物前駆体を原料とした気相（エアロゾル）合成法、火炎CVD法、熱プラズマ法などがあった。しかし、以上の方法は、一旦、原料を完全な気体状態として、それから核生成・粒成長過程を経るため、製品の一次粒子径が数～数10nmという大きさである場合が大部分と考えると良く、本発明のような（無機フィラー粉体として必要とされる）平均粒子径範囲が0.1～100 μm である製品は、実現できていなかった。

【0007】

即ち、既往の窒化アルミニウム粉体の主な三つの製法によると、（1）直接窒化法では粒子径は満足されるが形状が不可、（2）還元窒化法では球形度は満足されるが粒子径が不可、（3）従来の気相合成法では粒子径が不可、となり、粒子径と形状の両方を満たすことが現時点では出来ていなかった。

【 0 0 0 8 】

現行の代表的フィラーのシリカでは、可燃性ガスと酸素の混合ガスの燃焼火炎中に珪石原料やSi金属粉を投入し、原料表面の溶融や、気相中の蒸発－反応－結晶化プロセスにより、球形度の高いシリカ粒子を製造するという、化学炎プロセスが一般的である。気相中で化学反応が進行した場合に、立体的に周囲から作用を及ぼされることが少ないため、球状に形を構成し易いというエアロゾル合成の特長を利用している。この方法や製造装置を窒化アルミニウム粉体に適用すれば、（１）粒子径が小さいこと、或いは形状異方性が大きいという欠点の解消、（２）シリカフィラー合成で蓄積されてきた粉体合成制御等の知的資産やノウハウの利用により、粒子径分布など粉体特性の制御性向上や、必要特性を得るための検討時間の短縮、（３）化学炎法の製造装置の流用による初期設備投資の優位性など、多くの利点が期待される。しかし、これまで（恐らく検討は行われてきたものと思われるが）「窒化アルミニウム“フィラー”化学炎プロセス」は実現されてこなかった。これは、（１）シリカと異なり、融点の存在しない窒化アルミニウムでは「原料粉体表面の溶融」による球状化は期待できないこと、（２）「酸素」の存在する火炎中へ単純に原料を投入するだけでは、非酸化物の窒化アルミニウムが製造できないこと、（３）これまでは一度の反応で完全な窒化アルミニウムの結晶構造を有した粉体を合成しなければならないと考え、気相合成の特徴である複数の反応を連続化できる点に着目しなかったこと、などが問題点であった。

【 0 0 0 9 】

【発明が解決しようとする課題】

本発明は、このような従来の窒化アルミニウム粉体、及びその製造方法又は製造装置が持つ欠点を克服し、火炎の存在下、気相中で窒化反応が進行するようにしたことにより、組成が無機材料から成る粉体を組成が有機材料から成る樹脂系原料に充填して用いる複合材料系において、その原料粉体（フィラー）として必要な数 μm ～数 $10\mu\text{m}$ の粒子径と球形度を達成した新規な窒化アルミニウム粉体、その製造方法及び製造装置を提供することを目的として開発されたものである。

【0010】

【課題を解決するための手段】

本発明者らは、(1) 第一にシリカのように溶融過程を利用できなくとも、気相中で化学反応が進行した場合に、立体的に周囲から作用を及ぼされることが少ないため、球状に形を構成し易いというエアロゾル合成の特長が利用し得ること、(2) 第二に可燃性ガスと酸素の割合を完全燃焼比より酸素を少なくした還元性燃焼火炎により、炭化物粒子や、ダイヤモンド薄膜が製造されていること、(3) 第三に化学炎法では、気相合成の特徴である複数の反応を連続化して用いることが可能（或いは比較的容易）であること、に着目した。

以上の着想を実現すべく鋭意検討した結果、具体的には、(1) 流動化媒体を併用する流動層プロセスを利用するなど、粉体状の原料を凝集の少ない高分散の状態で供給すること、(2) 燃焼火炎或いはプラズマ火炎中の酸素濃度の調整と同時に、生産性の観点から、火炎による高温を駆動力にした直接窒化法又は還元窒化法を主反応系として適用すること、(3) 原料と火炎の量比率の適正化により窒化アルミニウムの結晶構造の生産性を高めるか、或いはAl元素・O元素・N元素から成る中間相前駆体を先ず製造し、後段に熱処理工程を連続化することで窒化アルミニウムの結晶構造とすること、以上三点の制御を同時かつ効果的に組み合わせることで、フィラーとして必要な粒子径と球形度を達成した窒化アルミニウム粉体を製造可能なことを見出した。本発明はかかる知見に基づいて完成したものである。

【0011】

即ち、本発明は、これまで想像の産物でしかなかった数 μm ～数 $10\mu\text{m}$ の粒子径と球形度を達成した新規な窒化アルミニウム粉体、その製造方法及び製造装置を、火炎の存在下、気相中で窒化反応が進行するようにしたことにより提供するものである。

【0012】

上記課題を解決するために、本発明では以下のような構成が採用される。

(1) 火炎で合成した窒化アルミニウム製フィラー粉体であって、粒子径範囲が $0.001\sim500\mu\text{m}$ に含まれ、平均粒子径範囲が $0.1\sim100\mu\text{m}$ で、粒

子の外形が球状であり、火炎の存在下、気相中で製造したことを特徴とする Al 及び O 及び N 元素を含む粉体又は Al 及び N 元素を含む粉体。

(2) C 又は H 元素から成る可燃性ガス単独の燃焼火炎、又は可燃性ガスと酸素の混合ガスの燃焼火炎、又は可燃性ガスと酸素の割合を完全燃焼比より酸素を少なくした還元性燃焼火炎、又は不活性ガスのプラズマによる火炎、又は高電圧を印加された非接触状態下の金属間に発生するアーク炎、の存在下で製造することを特徴とする前記 (1) に記載の粉体。

(3) 原料を粒子径範囲が $0.001 \sim 500 \mu\text{m}$ に含まれる Al 元素から成る粉体とし、窒素又はアンモニア又は不活性ガスの存在下で、火炎を用いて窒化反応を進行させることを特徴とする前記 (1) に記載の粉体。

(4) 原料を夫々の粒子径範囲が $0.001 \sim 500 \mu\text{m}$ に含まれる Al 及び O 元素から成る粉体と C 元素から成る粉体の混合物とし、窒素又はアンモニア又は不活性ガスの存在下で、火炎を用いて窒化反応を進行させることを特徴とする前記 (1) に記載の粉体。

(5) 前記 (1) ～ (4) のいずれかに記載の粉体を、火炎又は粉体に高温を付与可能な装置を用いて、連続的又は断続的に、 $500 \sim 10000^\circ\text{C}$ の温度範囲で、空气中又は窒素又はアンモニア又は不活性ガスの存在下で、又は真空状態で、熱処理を行うことを特徴とする前記 (1) に記載の粉体。

(6) 前記 (1) ～ (5) のいずれかに記載の粉体を製造する方法であって、粒子径範囲が $0.001 \sim 500 \mu\text{m}$ に含まれ、平均粒子径範囲が $0.1 \sim 100 \mu\text{m}$ である原料粉体を高分散かつ安定な流動化又はエアロゾル状態に形成する工程、

上記原料粉体を火炎の存在下で直接窒化又は還元窒化する窒化反応に付して窒化物を合成する工程、

必要により、上記窒化物を熱処理する工程、から成ることを特徴とする Al 及び O 及び N 元素を含む粉体又は Al 及び N 元素を含む粉体の製造方法。

(7) 前記 (1) ～ (5) のいずれかに記載の粉体から成る原料粉体（フィラー）であって、組成が無機材料から成る粉体を、組成が有機材料から成る樹脂系原

料に充填して用いる複合材料系において、その原料粉体（フィラー）として用いるための Al 及び O 及び N 元素を含む粉体又は Al 及び N 元素を含む粉体。

（８）前記（１）～（５）のいずれかに記載の粉体の製造に使用するための装置であって、火炎の発生装置と、原料粉体の供給装置と、空気又は窒素又はアンモニア又は不活性ガスの供給装置とを構成要素とし、原料粉体の窒化反応が、火炎の存在下、気相中で進行するようにしたことを特徴とする製造装置。

（９）同軸上に内径の異なる複数個の円筒管を組み合わせた構造を有する火炎の発生装置を構成要素とし、何れかの円筒管へ原料粉体を供給し、他の円筒管へ反応ガスを供給して、原料粉体の該円筒管先端部付近で、原料粉体と反応ガスとが拡散混合され、原料粉体の窒化反応が火炎の存在下、気相中で進行するようにしたことを特徴とする前記（８）に記載の製造装置。

【 0 0 1 3 】

【発明の実施の形態】

次に、本発明についてさらに詳細に説明する。

本発明の重要な技術的要件は、次の三点にある。（１）粒子径範囲が 0. 0 0 1 ~ 5 0 0 μ m に含まれる原料粉体の、高分散かつ安定な流動化又はエアロゾル状態の形成、（２）火炎中のガス雰囲気調整、及び火炎による高温を駆動力にした直接窒化法又は還元窒化法の利用、（３）原料及び火炎量の比率制御、又は熱処理工程の連続化。

【 0 0 1 4 】

「Al 元素から成る粉体」として記述した粉体状の原料の材料系については、任意の粒子径のアルミニウム金属粉体、水・ガス・遠心の各アトマイズ法で製造された球形度の高い気相合成・Al 系粉体群を好適とするが、更に $AlCl_3$ 等の塩化物、アルミニウムイソプロポキシド $Al(iso-OC_3H_5)_3$ 等のアルコキシド原料、アルミニウムアセチルアセトナト $Al(iso-C_5H_7O_2)_3$ 等の β ジケトン錯体、トリメチルアルミニウム $Al(CH_3)_3$ 等のアルキルメタル等の低沸点の気相合成原料群、などが例示されるが、特に制限はない。

【 0 0 1 5 】

「Al 及び O 元素から成る粉体と C 元素から成る粉体の混合物」として記述し

た粉体状の原料の材料系について、まず「Al及びO元素から成る粉体」については、市販のバイヤー法・改良バイヤー法・アルコキシド法・アンモニウムドーソナイト法・気相法などで製造されたアルミナ Al_2O_3 粉体群を好適とするが、更に $\alpha \cdot \gamma \cdot \theta \cdot \kappa$ の各 Al_2O_3 多系（中間アルミナ）、 $AlOOH$ や $Al(OH)_3$ の化学式で表現される水酸化物前駆体、アセチルアセトナト $Al(C_5H_7O_2)_3$ やアンモニウムドーソナイト $NH_4AlCO_3(OH)_2$ の化学式で表現される炭酸塩前駆体、アルミニウムイソプロポキシド $Al(iso-OC_3H_5)_3$ 等のアルコキシド原料、アルミニウムアセチルアセトナト $Al(iso-C_5H_7O_2)_3$ 等の β ジケトン錯体、トリメチルアルミニウム $Al(CH_3)_3$ 等のアルキルメタル等の低沸点の気相合成原料群、などが例示されるが、特に制限はない。

また、「C元素から成る粉体」については、任意の粒子径の炭素粉体、カーボンブラックやアセチレンブラックなど純度の高い気相合成・炭素粉体、などが例示されるが、特に制限されるものではない。

上記原料粉体は、粒子径範囲が $0.001\mu m \sim 500\mu m$ に含まれ、平均粒子径範囲が $0.1 \sim 100\mu m$ であることを技術的要件とするが、その理由は、原料粉体の形状が、合成される窒化アルミニウム粉体の形状に反映されるためである。

また、原料粉体の供給装置としては、ニーダー等のスクリー式、二軸ミル等のローター式供給装置、粉体搬送用の気体供給等が例示される。

【0016】

原料粉体の流動化又はエアロゾル状態の形成方法については、気流にのせて粉体を滞留化させる各種の流動層法（原料粉体より大きく流動化し易い数 $100\mu m$ 直径の媒体メディアを同時に用いて、原料粉体の凝集を防止しながら高分散化を図る媒体流動層法、粉体層に振動を印加して微粒子のチャネリングを防止する振動流動層法などを含む）を好適とするが、例えば、更に回転円板やガスノズルを用いて粉体を気流にのせる各種噴霧法、液体媒体中に粉体を分散させ超音波噴霧器や遠心噴霧器などで液体ごと粉体を液滴化する液体噴霧法なども適用可能であり、特に制限されるものではなく、いずれの方法で調製された流動化原料粉体

も適用できる。

空気又は窒素又はアンモニア又は不活性ガスの供給・制御装置としては、コンプレッサー等の圧縮ガス供給機、ガス製造設備より供給される高圧ガスポンベの内圧利用、浮き玉式流量計、マスフローコントローラーなどが例示される。

【0017】

火炎の原料や発生方法については、水素 H_2 、メタン CH_4 ・ブタン C_3H_8 ・アセチレン C_2H_2 等の液化石油ガス、アンモニア NH_3 等のC又はH元素などから成る各種の可燃性ガス、及び酸素 O_2 等の支燃性ガスを好適とするが、更にアルゴンArなど不活性ガスの電離によるプラズマ火炎、又は被覆棒アーク・ザブマージアーク・イナータガスアークなど高電圧を印加された非接触状態下の金属間に発生するアーク炎なども適用可能であり、特に制限されるものではなく、いずれの方法で調製された火炎も適用できる。

火炎の発生装置としては、液化ガス或いは都市ガス用のガスバーナー、ガス溶接ガン、アーク溶接ガン、熱プラズマ装置等が例示されるが、好適には、例えば、同軸上に内径の異なる複数個の円筒管を組み合わせた構造を有する火炎の発生装置を構成要素とし、何れかの円筒管へ原料粉体を供給し、他の円筒管へ反応ガスを供給して、原料粉体の該円筒管先端部付近で、原料粉体と反応ガスとが拡散混合され、原料粉体の窒化反応が火炎の存在下、気相中で進行するようにした装置が例示される。

【0018】

火炎中で合成された粉体に連続的又は断続的に高温を付与する方法・装置については、熱CVD法等で採用される通常の電気炉加熱を好適とするが、熱処理用の燃焼火炎を複数設ける事による火炎再加熱、プラズマ炎やアーク炎の利用、イメージ炉式加熱なども適用可能であり、特に制限されるものではない。

熱処理の条件は、火炎中で合成された直後のAs-preparedの粉体の形態や結晶相により決定され、As-prepared粉体の特性で満足される場合、熱処理は必ずしも必要ない。一般的な条件として、窒素又はアンモニア又は不活性ガス0.001~1000L/minのガス流量範囲、500~1000℃の温度範囲が例示される。熱処理により、Al-O-N中間体とAlN相

の割合・高制御化の格段の効果が得られる。

【0019】

組成が無機材料から成る粉体を、組成が有機材料から成る樹脂系原料に充填して用いる複合材料系については、半導体素子の保護・絶縁などを目的としたパッケージング材料を好適とするが、更に絶縁材料や電極・導電材料、電気粘性流体、化学機械研磨用スラリー、射出成形や鋳込み成形などのセラミック成形プロセス原料などの材料系も例示される。充填するフィラーである無機材料から成る粒子状材料については、半導体パッケージング材料で多用されるシリカ SiO_2 又は窒化アルミニウム AlN を好適とするが、例えば Al_2O_3 、 SiC 、 Si_3N_4 などの他の酸化物系、 Au 、 Ag 、 Pd 、 Pt 、 Cu 、 Al 、 Au-Pd など金属系も当然適用可能であり、特に制限はない。また、結晶性についても制限は無く、結晶性又は非晶質何れでも構わない。媒体である液状材料については、イオン交換水や蒸留水などの水系、エタノールなどの有機非水系のほか、レゾール型やノボラック型のフェノール樹脂、ビスフェノール型クレゾールノボラック多官能型のエポキシ樹脂、ハロゲン化樹脂など、常温で固形タイプの樹脂材料や、常温で液状タイプの次世代半導体素子用のパッケージング材料で多用される樹脂材料を好適とするが、特に制限はない。

【0020】

本発明は、平均粒子径が $10\ \mu\text{m}$ オーダー程度の粒子径、サブ μm オーダーから 10 数 μm オーダーまでの幅広い粒子径分布、高い球形度、が同時に達成された窒化アルミニウム粉体、及びその製造する技術や製造装置を提供することができ、特に、半導体パッケージング材料を好適とする、組成が無機材料から成る粉体を、組成が有機材料から成る樹脂系原料に充填して用いる複合材料系において、その原料フィラー粉体として最適である。

本発明の方法により合成した窒化アルミニウム粉体の特性を以下に示す。

粒子径範囲が $0.001 \sim 500\ \mu\text{m}$ に含まれ、平均粒子径範囲が $0.1 \sim 100\ \mu\text{m}$ で、粒子の外形が長軸径：短軸径がほぼ $1:1$ の球状である。また、結晶相は、 Al-O-N 中間相か AlN 相まで任意に制御して作製可能である。

【0021】

【実施例】

次に、実施例により本発明を具体的に説明するが、本発明は、以下の実施例によってなんら限定されるものではない。

(1) 方法

図1に、本発明に基づく製造装置の構成の一例を模式的に示した。液化石油ガスと酸素・窒素・アンモニア系の化学炎と、粒子状の原料粉体とから成る、エアロゾル合成プロセスを基礎とした。図1では、 Al 金属又は $Al_2O_3 + C$ の原料粉体 (Raw powder) と窒素ガスを流動層エアロゾル発生装置 (Fluidized bed aerosol generator) に供給し、エアロゾルの粒子サイズを選別 (Classification) し、火炎反応器 (Flame reactor, Diffusion burner) に炭化水素ガス (Hydrocarbon gases) を供給すると共に、酸素と窒素又は酸素とアンモニアガスをガス制御因子 (Gas composition control) として供給して、火炎 (Flame) で気相合成し、生成物をポンプ (Pump) で引いてフィルター (Filter) を通し、トラップするステップからなる構成が採用される。化学炎法へ適用する基礎反応系の一例として、 Al 粉体の直接窒化法を用いた (還元窒化法でも問題はない)。 Al 原料粉体は直径 $10\ \mu m$ のガスアトマイズ法による球状粉体とした。流動化は媒体流動層法とし、直径 $150\ \mu m$ のガラスビーズを媒体として用いた。反応器はステンレス製二重円筒管による拡散火炎式とし、最内管へ原料粉体及び反応ガス系、最外管へ火炎原料ガスを供給した。原料粉体は窒素ガスにより $10\ L/min$ で、液化石油ガスは $5\ L/min$ で供給し、制御因子である酸素ガスは、液化石油ガスとの化学量論比から還元性火炎側へ調節した。更に必要に応じて、窒素ガス $0.5\ L/min$ 気流中、およそ $1000^\circ C$ 程度で、合成した粉体を熱処理した。

【0022】

(2) 結果

図2に、本発明の方法による、窒化アルミニウム粉体の一例のSEM写真を示す。フィラー粉体として主に必要な、(1) 平均粒子径が $10\ \mu m$ オーダー程度の粒子径、(2) サブ μm オーダーから 10 数 μm オーダーまでの幅広い粒子径分布、(3) 高い球形度、が実現され、これまで想像の産物でしかなかった粒子

径（及び“粒子径分布”）と球形度を同時に達成した新規な窒化アルミニウム粉体を得ることができた。

【 0 0 2 3 】

【発明の効果】

以上詳述した通り、本発明によれば、（１）平均粒子径が $10\ \mu\text{m}$ オーダー程度の粒子径を有する窒化アルミニウム粉体を得られる、（２）サブ μm オーダーから 10 数 μm オーダーまでの幅広い粒子径分布を有する窒化アルミニウム粉体を得られる、（３）前記の粒子径特性を満たし、同時に従来に無い高い球形度が実現される（従来、平均粒子径が $10\ \mu\text{m}$ 程度の窒化アルミニウム粉体では、角張った形状異方性の高い粉体しか無かった）、（４）特に、半導体パッケージング材料を好適とする、組成が無機材料から成る粉体を、組成が有機材料から成る樹脂系原料に充填して用いる複合材料系において、その原料フィラー粉体として最適である、という格段の効果が奏される。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

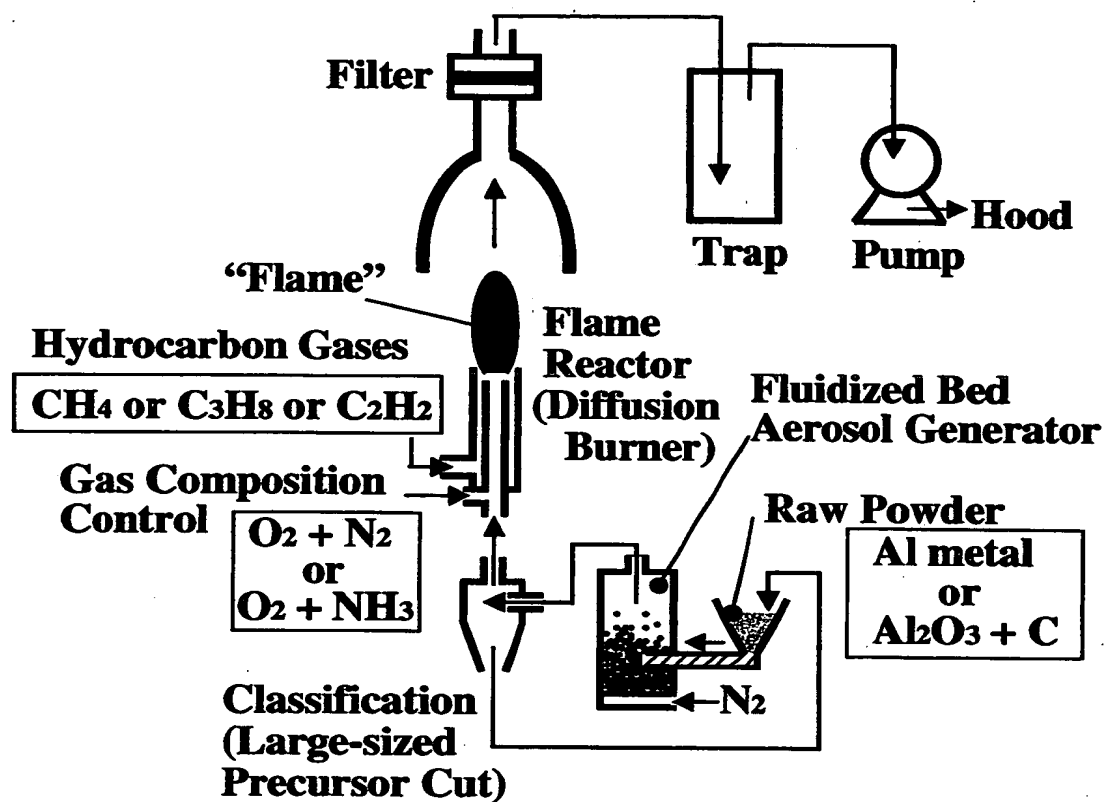
本発明に基づく製造装置構成の一例の模式図である。

【図 2】

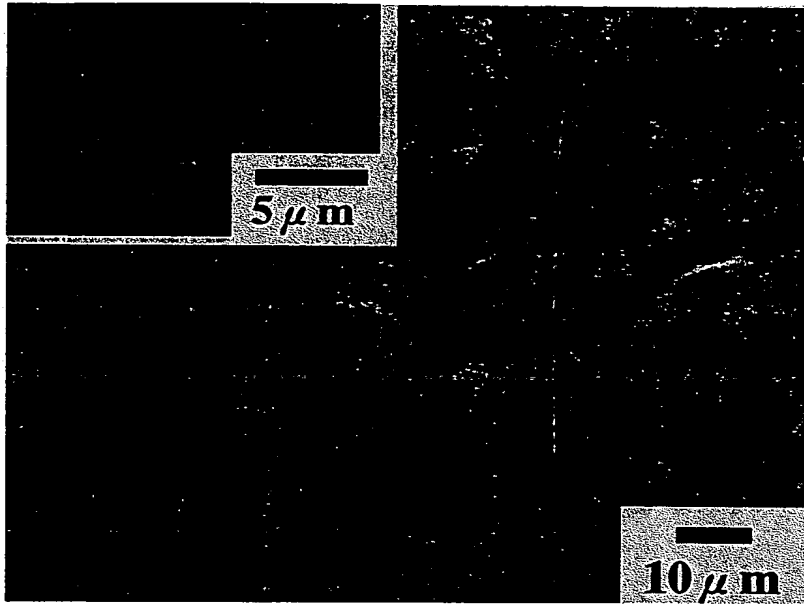
実施例で製造した、窒化アルミニウム粉体の一例の SEM 写真である。

【書類名】 図面

【図 1】



【図 2】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 従来の窒化アルミニウム粉体、及びその製造方法又は製造装置が持つ欠点を改善し、組成が無機材料から成る粉体を組成が有機材料から成る樹脂系原料に充填して用いる複合材料系において、その原料粉体（フィラー）として必要な数 μm ～ 数 $10\ \mu\text{m}$ の粒子径と球形度を同時に達成した新規な窒化アルミニウム粉体、その製造方法及び製造装置を提供する。

【解決手段】 火炎の存在下、気相中で窒化反応が進行するようにした製造方法及びその製造装置を用いて、以下の技術的要件：（１）粒子径範囲が $0.001 \sim 500\ \mu\text{m}$ に含まれる原料粉体の、高分散かつ安定な流動化又はエアロゾル状態の形成、（２）火炎中のガス雰囲気調整、及び火炎による高温を駆動力にした直接窒化法又は還元窒化法の利用、（３）原料及び火炎量の比率制御、又は熱処理工程の連続、を同時に制御することにより、目的の窒化アルミニウム粉末を製造する。

【選択図】 なし

認定・付加情報

特許出願の番号	特願2000-322130
受付番号	50001363224
書類名	特許願
担当官	東海 明美 7069
作成日	平成12年10月30日

<認定情報・付加情報>

【特許出願人】

【識別番号】	000001144
【住所又は居所】	東京都千代田区霞が関1丁目3番1号
【氏名又は名称】	工業技術院長

【指定代理人】

【識別番号】	220000334
【住所又は居所】	愛知県名古屋市北区平手町1-1
【氏名又は名称】	工業技術院名古屋工業技術研究所長

【書類名】 出願人名義変更届（一般承継）

【提出日】 平成13年 1月16日

【あて先】 特許庁長官 殿

【事件の表示】

【出願番号】 特願2000-322130

【承繼人】

【識別番号】 301000011

【住所又は居所】 東京都千代田区霞が関1-3-1

【氏名又は名称】 経済産業省産業技術総合研究所長 日下 一正

【連絡先】 部署名 経済産業省産業技術総合研究所

名古屋工業技術研究所業務課

担当者 中田正人

電話番

号 0 5 2-9 1 1-2 1 1 7

【提出物件の目録】

【物件名】 権利の承継を証明する書面 1

【援用の表示】 平成3年特許願第130778号

【プルーフの要否】 要

認定・付加情報

特許出願の番号	特願2000-322130
受付番号	50100051889
書類名	出願人名義変更届（一般承継）
担当官	東海 明美 7069
作成日	平成13年 2月 9日

<認定情報・付加情報>

【承継人】	申請人
【識別番号】	301000011
【住所又は居所】	東京都千代田区霞が関1丁目3番1号
【氏名又は名称】	経済産業省産業技術総合研究所長

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000001144]

1. 変更年月日	1990年 9月20日
[変更理由]	新規登録
住 所	東京都千代田区霞が関1丁目3番1号
氏 名	工業技術院長

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [301000011]

1. 変更年月日	2001年 1月 4日
[変更理由]	新規登録
住 所	東京都千代田区霞が関1丁目3番1号
氏 名	経済産業省産業技術総合研究所長